

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公表特許公報 (A)

(11)特許出願公表番号

特表2003-527363

(P2003-527363A)

(43)公表日 平成15年9月16日(2003.9.16)

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	キーワード(参考)
C 0 7 C 27/02	Z A B	C 0 7 C 27/02	Z A B 4 D 0 7 6
B 0 1 D 3/14		B 0 1 D 3/14	A 4 F 3 0 1
B 2 9 B 17/02		B 2 9 B 17/02	4 H 0 0 6
C 0 7 C 31/20		C 0 7 C 31/20	A
51/09		51/09	

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 14 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2001-567679(P2001-567679)  
(86) (22)出願日 平成13年3月8日(2001.3.8)  
(85)翻訳文提出日 平成14年9月17日(2002.9.17)  
(86)国際出願番号 P C T / C Z 0 1 / 0 0 0 1 5  
(87)国際公開番号 W O 0 1 / 0 6 8 5 8 1  
(87)国際公開日 平成13年9月20日(2001.9.20)  
(31)優先権主張番号 P V 2 0 0 0 - 9 6 9  
(32)優先日 平成12年3月17日(2000.3.17)  
(33)優先権主張国 チェッコ (C Z)

(71)出願人 シーレク、 ミラン  
チェコ共和国 120 00 プラハ 2 マ  
ラー シュチェバーンスカー 11  
(71)出願人 イロウシェク、 ヤロスラフ  
チェコ共和国 398 48 イェチェティツ  
ェ 88  
(72)発明者 シーレク、 ミラン  
チェコ共和国 120 00 プラハ 2 マ  
ラー シュチェバーンスカー 11  
(72)発明者 イロウシェク、 ヤロスラフ  
チェコ共和国 398 48 イェチェティツ  
ェ 88  
(74)代理人 弁理士 中島 淳 (外2名)  
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 ポリエチレンテレフタレート廃棄物の化学的再利用方法

(57)【要約】

提案された方法は、ポリエチレンテレフタレート廃棄物を、テレフタル酸およびエタンジオールへとする、化学的再利用方法であって、段階的工程による連続系によるものであり、すなわち、(a)結晶化、粉碎、およびこれに続く篩い分けによる、ポリエチレンテレフタレート成分の脆性形態への転換による、投入材料のポリエチレンテレフタレート成分を分離する工程、続いて、(b)ポリマー溶融物に蒸気が供給される第1段階、第1段階の生成物と水酸化アンモニウムとの反応によって行われる第2段階、によって行われるポリエチレンテレフタレートの連続的2段階加水分解工程、続いて、(c)無機酸によって、第2段階の加水分解の生成物の水溶液から、テレフタル酸を固体化し、濾過によってそのテレフタル酸の固体を分離する工程、ならびに、最後に(d)テレフタル酸の分別後に、加水分解の第2段階の生成物溶液から、エタンジオールを精留分離する工程、を行う。

BEST AVAILABLE COPY

**【特許請求の範囲】**

【請求項 1】 ポリエチレンテレフタレート廃棄物の加水分解による、ポリエチレンテレフタレート廃棄物をテレフタル酸およびエタンジオールへとする、化学的再利用方法であって、その目的は該廃棄物の解重合であり、該解重合は段階的工程による連続系からなる、すなわち、

(a) 結晶化、粉碎、およびそれに続く篩い分けにより、ポリエチレンテレフタレート成分を脆性形態へ転換することによって、投入される材料のポリエチレンテレフタレート成分を分離する工程、

続いて、(b) ポリマー溶融物に蒸気が供給される第 1 段階、及び第 1 段階の生成物と水酸化アンモニウムとを反応させる第 2 段階、によって行われる、該ポリエチレンテレフタレートの連続的 2 段階加水分解工程、

続いて、(c) 無機酸によって、第 2 段階の加水分解の生成物の水溶液から、テレフタル酸を固体化し、濾過によってそのテレフタル酸の固体を分離する工程、ならびに、最後に (d) テレフタル酸の分離の後に、加水分解の第 2 段階の生成物溶液から、エタンジオールを精留分離する工程、を行うことを特徴とする。

【請求項 2】 前記処理法の (a) 工程において、投入される材料のポリエチレンテレフタレート成分の結晶化は、投入される材料を、15～60 分間、摂氏 140～190℃の温度範囲で加熱することによって行われることを特徴とする、請求項 1 に記載の化学的再利用方法。

【請求項 3】 前記処理法の (b) 工程において、ポリエチレンテレフタレート加水分解の第 1 段階は、スクリュウ長さがスクリュウ直径の少なくとも 25 倍 ( $L/D \geq 25$ ) であるダブルスクリュウ押出機と、反応器出口にあるフォローアップスタティックミキサーとからなる押出反応器中での、反応性押出によって行われることを特徴とする、請求項 1 に記載の化学的再利用方法。

【請求項 4】 前記処理法の (b) 工程における加水分解の第 1 段階の生成物が、押出反応器の出口から、第 2 段階の反応器に送られ、そこで過剰の水酸化アンモニウム水溶液と反応して、テレフタル酸およびエタンジオールを生成することを特徴とする、請求項 1 に記載の化学的再利用方法。

【請求項 5】 前記処理法の (c) 工程において、第 2 段階の加水分解生成

(3)

物水溶液の濾液からのテレフタル酸が、塩酸、リン酸および硫酸から成る群から選択される無機酸によって、固体化されることを特徴とする、請求項 1 に記載の化学的再利用方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

## 【発明の属する技術分野】

本発明は、ポリエチレンテレフタレート廃棄物をテレフタル酸およびエチレングリコールへと化学的に再利用する方法に関する。

## 【0002】

## 【従来の技術】

エチレングリコールとテレフタル酸とを組合せて、ポリエチレンテレフタレート（PET）を得る重縮合は、可逆反応プロセスであり、このプロセスにより、PETを解重合してモノマーまたはオリゴマーへと戻すことが可能である。本来、PET解重合は、糖分解、加水分解またはアルコール分解と同様に行うことができる。グリコール雰囲気でのPETの分解、すなわち糖分解は、原則的にはPETグリコールのエステル交換反応に基づいており、芳香族ポリオール混合物を生じ、これはポリウレタンまたは不飽和ポリエステル樹脂の生成において処理することができる（米国特許第3、222、299号、第4、078、143号）。PET廃棄物を再利用する糖分解式法のために投入される原料が十分純粋である場合、すなわち分別され、洗浄され、かつ着色PETの混和が無ければ、このプロセスのオリゴマー生成物は、新しいPETの重合のために使用することができる。

## 【0003】

PETへの重縮合のために使用可能なモノマーは、PET廃棄物の加水分解、またはアルコール分解の処理を通して得ることができる。PETの加水分解生成物は、エチレングリコールおよびテレフタル酸を含み、一方、アルコール分解では、エチレングリコールおよびテレフタル酸のそれぞれのエステルを生じる。デュポン社によって特許化されている古い処理方法では（米国特許第3、544、622号）、摂氏90～150℃の温度および大気圧下で、粉碎したPETを、NaOHとエチレングリコールの水溶液中で加水分解し、テレフタル酸ジナトリウム塩を得ている。テレフタル酸のジナトリウム塩の収率は、97.5%である。廃棄ボトルを処理するために最近ミシガン工業大学によって開発された処理法

は、酢酸ナトリウムによって触媒される、摂氏150～250℃の温度および加圧下において過剰の水の中において行われる、粉碎されたPETの加水分解に基づいている（米国特許第4542239号）。このプロセスによると、エチレングリコールとテレフタル酸へのPETの完全分解は、4時間以内に達成される。

#### 【0004】

縮合ポリマーの中性加水分解による異なる処理法が、米国特許第4、605、762号に述べられている。この発明は、基本的には過熱蒸気による縮合ポリマーの中性加水分解に基づいている。この発明によれば、ポリエステル、ポリアミドまたはポリカーボネートをベースとした廃棄物を、この処理に投入する材料として使用することができる。この加水分解処理法は、摂氏200～300℃の温度、及び最低1.5MPaの圧力で、圧力加水分解反応器中にて、連続的に行われる。この処理法は、蒸気が反応器の底部に供給され、固体化した加水分解生成物の溶液がトラップされて反応器上部から引き出される、対向流式として設計されている。供給された蒸気の熱エネルギーは、反応器を加熱するために使用される。投入された高分子物質は、あらかじめスクリュウ押出機で前処理して、熔融物の形で加水分解反応器に入れることができる。

#### 【0005】

別の発明によると（米国特許第6、031、128号）、着色ポリエステル繊維処理の工程から出る排水により、アルカリ性加水分解を用いて、PET廃棄物からテレフタル酸を生成することができる。この排水は、水酸化アルカリおよび湿潤剤を含む。

#### 【0006】

更には、主には最近である複数の発明が、最終生産物、すなわちテレフタル酸、をより高い純度でもたらし方法に関連している。WO95/10499号によれば、その処理法は、基本的には投入されたポリエステル材料のアルカリ加水分解的な解重合である。この処理法は、酸化段階、望ましくは空気吹き込み操作、を入れることによって改良され、そうして可溶性の汚染成分が不溶性のものへと変換される。不純物質の不溶性酸化生成物は、続いて濾過によって取り除かれる。この加水分解段階は、加水分解された混合物に、非イオノゲン性湿潤剤および

水酸化第四アンモニウムを添加することによって、さらに改良することができる。

#### 【0007】

WO97/24310号による処理法では、PET廃棄物に基づく原料から、高純度のテレフタル酸を再生する方法に取り組んでいる。この処理法では、湿潤剤と組み合わせた水酸化アルカリまたは水酸化アルカリ土類金属の水溶液による、アルカリ加水分解を用いている。テレフタル酸は、酸中和によって、水解物から得られる。この場合、固体化したテレフタル酸のより高い純度は、結晶化を通じてテレフタル酸粒子の拡大をコントロールすることによって、達成される。

#### 【0008】

粉碎されたPETを異なったアルコール影響の下に分解する方法は、1970年にイーストマンコダック社によって特許化されている（米国特許第3、501、420号）。しかしながら、PET分解にとって最適のアルコールは、メタノールのようなものである。メタノリシスによる処理法は、投入される材料の汚染に対し比較的許容力がある。着色PET種であっても、最高品質の透明なポリマー合成に適した生成物を得ることに対して障害とならない。メタノリシスの典型的な処理法においては、PET溶融物は1：4の割合でメタノールと混合され、その混合物は、約1時間、2.0～7.0MPaの圧力で、160～240℃の温度範囲で加熱される。ジメチルテレフタレートの99%の収率が報告されている（米国特許第3、403、115号）。

#### 【0009】

##### 【発明が解決しようとする課題】

糖分解に基づく処理法の利点は、投資コスト比較的低いことである。しかしながら、新しいPETの重合に好適な原料を得るためには、投入されるPET廃棄物材料は、高純度であり、また着色PET類が混和していないことが必要である。他方、PETのアルコール分解、特にメタノリシスは、投入材料中の含有不純物には比較的許容力があるが、必要な技術装置に対し非常に高い投資が必要とされる。

#### 【0010】

## 【課題を解決するための手段】

解重合の為に行われる本発明のポリエチレンテレフタレート廃棄物の加水分解は、碎かれ、廃棄され、選別されていないポリエチレンテレフタレート生成物、特に最高30%の不純物を含む飲料ビン、に対して行われるので、本発明のポリエチレンテレフタレート廃棄物のテレフタル酸およびエタンジオールへの化学的再利用の方法によって、現状の技術の上記欠点は、大幅に除去される。本質的に、本プロセスは以下の段階を含む：

## 【0011】

a) 第1工程は、結晶化、粉碎およびこれに続く篩い分けにより、投入材料のポリエチレンテレフタレート成分を、脆性の形態 (brittle form) への転換によって、分離することを含む。本発明の為には、ポリエチレンテレフタレートの結晶化は、最短25分、最長60分の間、摂氏140～190℃の範囲の温度で、投入された材料を加熱 (temp er) することによって行われる。この方法における投入材料の精製の重要な点は、前記の条件下において脆性を伴う結晶化が可能であるポリエチレンテレフタレート成分を、該条件下においても強靱なままでありかつ後続の粉碎にも耐える、ポリオレフィン、PVC、紙および接着剤残渣などの、投入材料中の不純物から、分離することにある。よって、粉碎された混合物には、ポリエチレンテレフタレートの微細粒子と、不純物による粗粒子とが含まれる。粉碎された材料における、ポリエチレンテレフタレート成分の中型サイズ粒子と、その他の成分の中型サイズの粒子との比率は、約1:10である。この後に、ポリエチレンテレフタレート成分は、この混合物から篩い分けによって取り出される。

## 【0012】

b) 次の工程はポリエチレンテレフタレートの連続的な2段式加水分解から成り、その第1段階は、押出反応器中のポリマー溶融物に蒸気を供給することにより行われる。反応器は、スクリュウの長さがスクリュウ直径の少なくとも25倍 ( $L/D \geq 25$ ) あるダブルスクリュウ押出機、およびその出口にあるフォローアップスタティックミキサーから成る。加水分解の第1段階における生成物は、押出反応器出口から第2段階の反応器に運ばれ、そこで過剰の水酸化アンモニウ



ム水溶液と反応して、テレフタル酸アンモニウム塩およびエタンジオールを生じる。水に不溶の混合物は、濾過によって、加水分解の第2段階の生成物溶液から取り除かれる。

【0013】

c) 次の工程は、無機酸による、加水分解の第2段階の生成物水溶液からのテレフタル酸の固体化 (condensation)、および濾過によるテレフタル酸の分離を含む。

【0014】

d) 最終工程では、テレフタル酸が分離された後に、連続的な2段式精留により、第2段階の加水分解生成物の濾液からエタンジオールが分離される。

【0015】

現在まで知られているPET廃棄物の再利用方法と比較すると、本発明の長所は、以下の通りである：

1. (a) 工程で述べられたように、固体相中において投入材料から汚染混合物を分離する効率が高いこと。PVC、非結晶性PETコポリマーおよび高分子接着剤の残渣などの、容易には分離できない混合物を、種々の操作を通して、分離することが可能であり、同時にプロセスの技術的単純さも維持している。
2. (b) 工程に述べられたように、バッチ式圧力反応器を利用する加水分解の古典的な方法に比較して、ポリエチレンテレフタレート加水分解のために、より低い投資のみが必要とされること。
3. (b) 工程に述べられたように、水への溶解性によって容易にされる、加水分解生成物の精製の高い効率と技術的単純さ。
4. 再利用により、最終生産物であるテレフタル酸およびエタンジオールの高純度を達成しつつ、ポリエチレンテレフタレート廃棄物の多くの不純物を含んだ投入材料をも処理できること。

【0016】

【発明の実施の形態】

捨てられた飲料ボトルの、未分別の粉碎された材料 (約10mmの中間粒子径、主に、キャップ類からのポリオレフィン、ラベルに由来する紙および接着剤、



他の種類のボトルからのPVC、ならびにボトルのキャップからのアルミニウム、からなる24質量%の固体混合物を含む)は、スクリーフィーダーを備えたトンネル炉中で摂氏175℃の温度に加熱され、該材料は、その炉の中に32分間保持される。炉の出口において、材料は摂氏40℃まで空冷され、空気式パイプコンベヤーによってローラーミルまで輸送され、そこで粉碎される。0.7mm未満の粒径によるフラクションは、ウィルフレートブル上での篩い分けにより、粉碎された混合物から分離される。この操作の途中、投入材料のポリエチレンテレフタレート成分は、もろくならなかった最も粗い不純物等から分離され、粒径という最小限の変化だけで、粉碎段階を通過する。篩い分けによって不純物を取り除かれた粉碎された投入材料は、押出反応器の装入ホッパーへと空気によって運ばれる。押出加水分解反応器は、80mmのスクリー直径および長さ対スクリー直径の比が $L/D=25$ であるダブルスクリー押出機、および押出機出口に直接接続するスタティックミキサーから構成される。スタティックミキサーは、直径80mmおよび長さ800mmの連続した軸対称空洞と、その空洞を満たす、幅40mmおよび厚さ8mmの、右回りと左回りが交互であるらせんの形状の6個のスタティック混合部をもつ、シリンダーとして設計されている。押出ローラーは、5つのゾーンで、(ホッパーから出口の方向へ)摂氏270/280/300/300/300℃の温度に調節されてる。スタティックミキサージャケットは、摂氏300℃に調整されている。3.8MPaの圧力下での蒸気供給は、押出機の長さの最初の3分の1の距離の端で行われる。押出機スクリーは、1分につき16回転の速度で回転する。同一圧力による蒸気の更なる供給は、スタティックミキサーの入口へともたらされる。形成された生成物によって自触媒される加水分解的ポリマー分解は、ポリエチレンテレフタレート材料の押し出しの過程で起こる。加水分解の第1段階のオリゴマー生成物から、残っている固体不純物を取り除くために、押出反応器出口上に、濾過装置が設置される。加水分解の第1段階の生成物は、加水分解の第2段階のために、攪拌したフロー反応器に供給される。この反応器中において、過剰の水酸化アンモニウム水溶液による、第1加水分解段階のオリゴマー生成物の加水分解反応が、摂氏200℃の温度かつ2.1MPaの圧力下で行われる。加水分解の第2段階の生成物、す

なわちテレフタル酸アンモニウム塩とエタンジオールの水溶液は、摂氏95℃に冷却され、テレフタル酸の酸性凝固のために、攪拌した反応容器へともたらされる。この反応容器中では、硫酸溶液によって、加水分解物からテレフタル酸が固体化される。得られた懸濁液は、真空ドラムフィルタへ送られ、そこで、テレフタル酸は濾取され、最終生産物として洗浄される。エタンジオールを含む濾液は、二段式精留塔に導かれ、そこで、エタンジオールが、水溶液から第2の最終生成物として分離される。

【0017】

【発明の効果】

ポリエチレンテレフタレート廃棄物をテレフタル酸およびエタンジオールへ化学的再利用するための提示された方法は、ポリエチレンテレフタレート製品、特に30%までの不純物を含有する、飲料ボトル、包装用フォイルおよび写真フィルムの廃棄混合物等を、新しいポリエチレンテレフタレート材料（PET）への重縮合に適した材料へと、化学的に再利用するために使用可能である。

## 【国際調査報告】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No. <b>PC1/CZ 01/00015</b>		
<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> IPC 7 C07C51/09 C07C63/26 C07C27/02 C08J11/14		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 C08J C07C		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal, WPI Data		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages Relevant to claim No.	
A	WO 95 27753 A (PETWEST PTY LTD ; SWIG PTY LTD (AU); WEST SIMON MICHAEL (AU)) 19 October 1995 (1995-10-19) page 6, line 17-20 page 7, line 3-5 page 9, line 1-6 example 3 claim 1 ---	1
A	DATABASE WPI Section Ch. Week 199616 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class A35, AN 1996-155970 XP002179415 & JP 08 039562 A (MITSUBISHI JUKOGYO KK), 13 February 1996 (1996-02-13) abstract --- -/-	1
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C.		
<input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.		
* Special categories of cited documents: *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance *E* earlier document but published on or after the international filing date *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is considered with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art *Z* document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search <b>5 October 2001</b>	Date of making of the international search report <b>19/10/2001</b>	
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.O. Box 5810 Postfach 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel: (+31-70) 340-2040, Tx 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3015	Authorized officer <b>Delanghe, P</b>	

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

(12)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Patent Application No  
PC1/CZ 01/00015

C (Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 4 605 762 A (MANDOKI JORGE W) 12 August 1986 (1986-08-12) cited in the application abstract claim 1 ---	1
A	DATABASE WPI Section Ch, Week 199927 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class A23, AN 1999-322106 XP002179416 & JP 11 114961 A (SEISHIN KIGYO KK), 27 April 1999 (1999-04-27) abstract ---	1
A	US 4 542 239 A (LAMPARTER RICHARD A ET AL) 17 September 1985 (1985-09-17) cited in the application the whole document ---	1

1

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1992)

(13)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No.

PCT/CZ 01/00015

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 9527753	A	19-10-1995	AU 2133195 A 30-10-1995
			WO 9527753 A1 19-10-1995
			ZA 9502933 A 05-11-1996
JP 8039562	A	13-02-1996	NONE
US 4605762	A	12-08-1986	CA 1234569 A1 29-03-1988
JP 11114961	A	27-04-1999	JP 3159947 B2 23-04-2001
US 4542239	A	17-09-1985	NONE

## フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7	識別記号	F I	備考 (参考)
C 0 7 C 63/26		C 0 7 C 63/26	A
C 0 8 J 11/14		C 0 8 J 11/14	
// C 0 8 L 67:02		C 0 8 L 67:02	
(81) 指定国 EP (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, I T, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OA (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AP (GH, G M, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), EA (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, B Z, CA, CH, CN, CO, CR, CU, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, J P, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, R O, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW			
Fターム (参考) 4D076 AA07 AA16 AA22 BB03 BB23 FA02 FA11 FA18 FA23 HA03 JA01 JA02 JA03 4F301 AA25 AB02 BC06 BC26 BF08 BF10 BF11 BF16 BF29 BF31 BF32 BG16 BG44 BG45 CA10 CA23 CA32 CA42 CA54 CA62 CA65 CA68 CA71 CA72 CA73 4H006 AA02 AC41 AC46 AC91 AD11 AD15 AD17 BD60 BE01 BE03 BE04 BE60			



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**